

Évaluation technique des instruments à télédétection optique : DOAS et LIDAR

T. Menard, M. Nomine, V. Tatry et Y. Godet

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Parc Technologique Alata, BP. 2, 60550 Verneuil en Halatte, France

The new generation of optical remote detection instruments such as FTIR, DOAS and LIDAR is issued from various technical developments during the last years. They offer new perspectives in the determination of the atmospheric characteristics since they allow measuring simultaneously several pollutants over long distances. The integration of these instruments into an experimental site or air quality control network involves the evaluation of their potentiality and the determination of their metrology performances. In this work, we focus on the estimate of DOAS and LIDAR.

Les nouvelles générations d'instruments à télédétection optique telles que FTIR¹, DOAS², LIDAR³ ont fait l'objet de nombreux développements techniques ces dernières années grâce, notamment, à l'évolution de sources optiques plus fiables, à des détecteurs de plus en plus sensibles, et à la capacité croissante des calculateurs et du traitement des signaux.

Ils ouvrent de nouvelles perspectives dans la détermination des caractéristiques atmosphériques. En effet, ces techniques permettent la mesure de plusieurs polluants sur de longues distances. Des appareils opérationnels sont commercialisés. Ils ont de nombreuses applications telles que la surveillance de la qualité de l'air en zone urbaine, dans les aéroports, dans les tunnels, en zones industrielles (panaches de fumées, stockages, stations d'épuration, ...) et permettent la validation de modèles de dispersion des polluants dans l'atmosphère (c'est le cas de l'instrument LIDAR principalement puisqu'il permet des mesures tridimensionnelles des polluants). L'intégration de ces instruments sur site d'étude ou en réseau de surveillance de la qualité de l'air nécessite d'évaluer leur potentialité et de déterminer leurs performances métrologiques.

Le calibrage et l'évaluation technique des instruments peuvent être réalisés soit par comparaison avec des analyseurs de référence (ayant déjà été évalués), comme le permet par exemple la norme allemande DIN, soit en mettant en œuvre une méthodologie adaptée fondée sur les principes des normes applicables aux analyseurs classiques de mesure ponctuelle des polluants.

La première méthode nécessite l'élaboration d'une stratégie afin d'obtenir des comparaisons représentatives (non homogénéité éventuelle des concentrations des gaz le long du trajet optique). Elle n'est cependant pas conforme aux procédures normalisées telles que celle préconisée en France (norme NF X 20-300).

La deuxième méthode s'appuie sur cette norme française, en développant un dispositif composé d'une cellule placée sur le chemin optique de l'instrument et alimentée alternativement en gaz de concentration connue (que l'on fait varier au cours des essais), puis en gaz de « zéro » (azote ou air purifié).

On détermine ainsi les performances des analyseurs par la mise en œuvre de séquences répétées d'un cycle de base comportant :

- la mesure du gaz de « zéro » pendant $\frac{1}{2}$ période du cycle,
- la mesure de la concentration C_i pendant la deuxième $\frac{1}{2}$ période.

La simulation des concentrations de polluants, en cellule de longueur réduite par rapport au trajet optique, est réalisée en augmentant la concentration du gaz dans la cellule d'un facteur tel que le produit « concentration \times longueur = constante » (Loi de Beer Lambert).

C'est cette méthode, également adoptée (avec des variantes) par US EPA, VDI/DIN en Allemagne, qui a été appliquée par l'INERIS, laboratoire français d'évaluation des instruments, sur un appareil LIDAR et sur des appareils DOAS.

Elle permet de déterminer les caractéristiques métrologiques principales des analyseurs comme par exemple :

- la linéarité,
- les seuils de détection,
- la dérive (de zéro et de sensibilité),
- l'influence de paramètres physiques,
- l'influence des interférents chimiques.

Compte tenu des principes de mesure très différents des instruments DOAS et LIDAR, la mise en œuvre des programmes d'essais et la présentation des résultats correspondants sont sensiblement différents.

Essais d'évaluation des instruments DOAS

Deux modèles d'appareils DOAS ont été testés :

¹ Spectroscopie d'absorption infrarouge à transformée de Fourier.

² Spectroscopie d'absorption optique différentielle.

³ Light detection and ranging.

- SANOA CD (puis 3 C) : développé en France par le CNRS et commercialisé par ENVIRONNEMENT S.A. (Photo 1),
- OPSIS : appareil suédois, commercialisé en France par NEREIDES. (Photo 2).

Ces deux instruments sont constitués d'un émetteur (source lumineuse UV visible) et d'un récepteur analysant

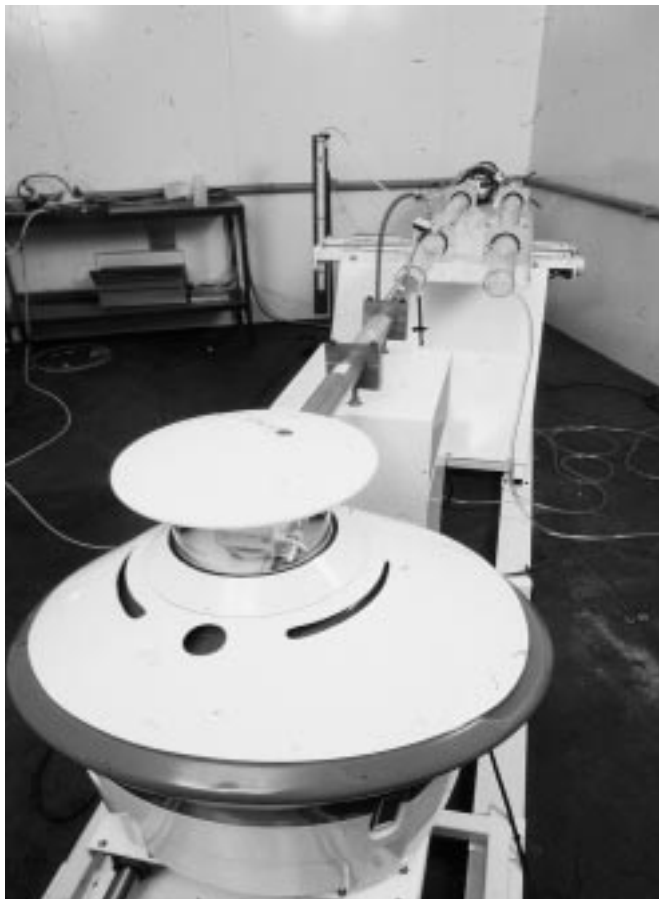


Photo 1. Appareil DOAS - SANOA.

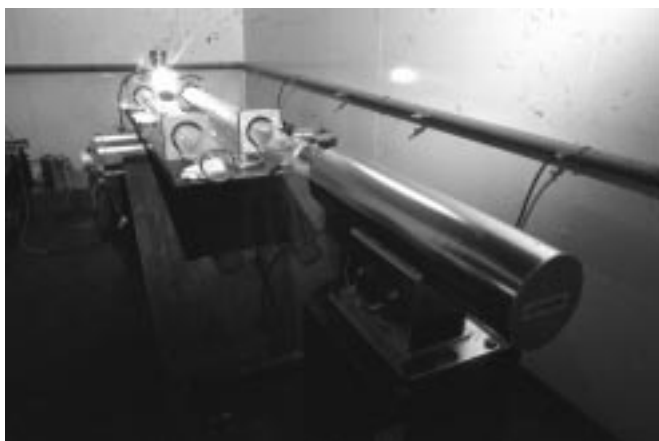


Photo 2. Appareil DOAS - OPSIS.

l'absorption de la lumière par les substances chimiques de l'atmosphère et déterminant les différentes concentrations des polluants par analyse mathématique du spectre d'absorption.

Ces deux types d'instruments ont été évalués à plusieurs reprises au cours des cinq dernières années et ont fait l'objet de développements et d'améliorations au fil du temps.

- **Les premiers essais** d'évaluation ont été réalisés en laboratoire dans une enceinte climatique de 40 m³ sur un trajet optique court en plaçant, entre l'émetteur et le récepteur, une cellule en verre de 2 m de longueur.

L'équipement comprenait des dispositifs de génération et de dilution des gaz ainsi que les moyens associés de contrôle, de saisie et de traitement des données.

Les principales caractéristiques ont été étudiées pour six gaz : dioxyde de soufre (SO₂), dioxyde d'azote (NO₂), ozone (O₃), formaldéhyde (HCHO), benzène (C₆H₆), toluène (C₇H₈).

Les résultats obtenus sont les suivants :

- les limites de détection apparaissent du même ordre de grandeur voire meilleures que celles obtenues avec des « appareils monopolluants » (SO₂, NO₂, O₃) ; par contre, elles sont de l'ordre de grandeur des concentrations mesurées dans l'air ambiant pour les composés organiques,
- les coefficients de réponse varient d'un appareil à l'autre pour les mêmes composés ; dans un cas, les résultats sont sous-estimés, dans l'autre, ils sont un peu surestimés,
- l'étude de l'influence de la température réalisée uniquement avec du SO₂ a montré qu'il y avait un effet significatif de ce paramètre sur un modèle d'appareil, pour une variation de 20 °C,
- l'étude des interférents chimiques réalisée de manière croisée montre une influence significative de l'ozone sur la mesure des composés organiques toluène et benzène.

Des résultats satisfaisants ont été obtenus pour la linéarité, la dérive de zéro et la dérive de sensibilité et l'influence d'une lumière parasite. L'utilisation des appareils est aisée et les logiciels conviviaux.

- **Une deuxième série de tests** d'évaluation a été effectuée en parallèle et simultanément sur les deux modèles d'appareils de versions récentes : OPSIS 300 et SANOA 3C, placés côte à côte dans une galerie souterraine d'une centaine de mètres. L'avantage de réaliser les essais en galerie souterraine est non seulement de se placer en situation « presque » réelle, mais également d'être à l'abri du rayonnement solaire, du vent, et d'être situé dans un espace homogène et non évolutif des concentrations de gaz.

Le trajet optique était égal à 90 m. Les essais ont porté sur trois gaz seulement : SO₂, NO₂ et O₃.

Le banc d'essais est schématisé (Fig. 1). Un analyseur (SO₂, NO₂ ou O₃ selon les essais) placé en sortie des cellules permettait de contrôler en continu les concentrations du mélange généré.

Outre le gaz de « zéro », quatre niveaux de concentration C_i ont été produits (de 2 ppm à 30 ppm environ dans les

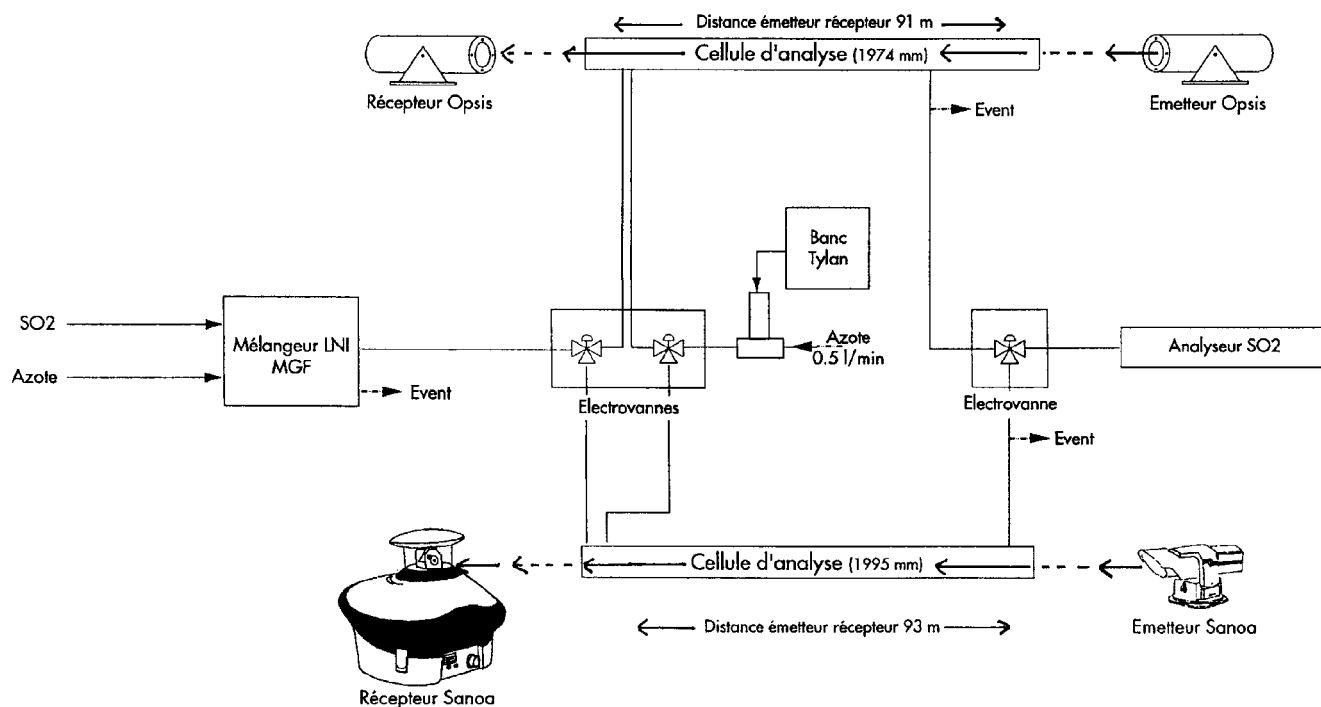


Figure 1. Schéma du banc d'essais (SO₂) installé en galerie souterraine.

cellules) et six cycles ($O - C_i$) par niveau de concentration ont été réalisés.

La comparaison des résultats peut être effectuée, d'une part, entre les deux types d'appareils testés simultanément en galerie et, d'autre part, entre les mêmes types d'appareils mais de versions différentes afin de vérifier une éventuelle amélioration des caractéristiques métrologiques.

Les résultats des essais (ramenés à une même longueur du trajet optique) montrent :

- une amélioration des performances de l'un des appareils dans sa nouvelle version et des résultats semblables pour le 2^{ème} type d'appareil dont les caractéristiques mesurées étaient déjà satisfaisantes,
- les limites de détection pour les 3 gaz testés, pour un trajet optique de 300 m :
 - sont comprises entre 1,5 et 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour SO₂,
 - sont comprises entre 2,1 et 3,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour O₃,
 - sont de l'ordre de 4,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour NO₂,
- des résultats satisfaisants pour les tests de dérive (0,04 %/jour) et de linéarité.

En outre, une comparaison des courbes de réponse des deux types d'instruments avec celles obtenues lors des essais réalisés par ERLAP à ISPRA a été effectuée et montre des résultats semblables aux nôtres.

Essais d'évaluation d'un instrument LIDAR

On rappelle que la technique LIDAR consiste à émettre des impulsions laser dans l'atmosphère et à analyser le

rayonnement rétrodiffusé (à la même longueur d'onde) collecté par un télescope, en fonction du temps (donc de la distance), en utilisant les propriétés d'absorption et de diffusion de la lumière par les particules (diffusion de Mie) et par les molécules (diffusion de Rayleigh).

Dans la pratique, on utilise l'absorption différentielle DIAL⁴. La source laser émet simultanément dans l'atmosphère à deux longueurs d'onde, l'une désignée par λ_{on} qui est fortement absorbée par le gaz considéré et l'autre par λ_{off} qui est faiblement absorbée. En appliquant la loi de Beer Lambert, on détermine par différence la concentration du polluant recherché en fonction de la distance.

En balayant l'atmosphère en azimuth et en élévation, on obtient ainsi des profils de concentration dans les 3 dimensions de l'espace.

Un exemple de profil vertical de la mesure d'ozone en fonction du temps (mesuré en Espagne) est donné par la figure 2.

L'instrument testé est présenté (photo 3). Il s'agit du LIDAR DIAL 510 M de la société ELIGHT. Il est équipé d'un laser Saphir-Titane pompé par lampes de haute énergie, doublé et triplé en fréquence. Un double oscillateur permet d'émettre les deux longueurs d'onde. À ce jour, il permet la mesure de 6 polluants : SO₂, O₃, NO, NO₂, toluène et benzène.

Une première évaluation a été menée et a porté sur un seul gaz : le SO₂. Elle avait pour objectif d'examiner le caractère opérationnel de l'appareil et sa sensibilité vis-à-vis d'un gaz.

⁴ Differential absorption Lidar.

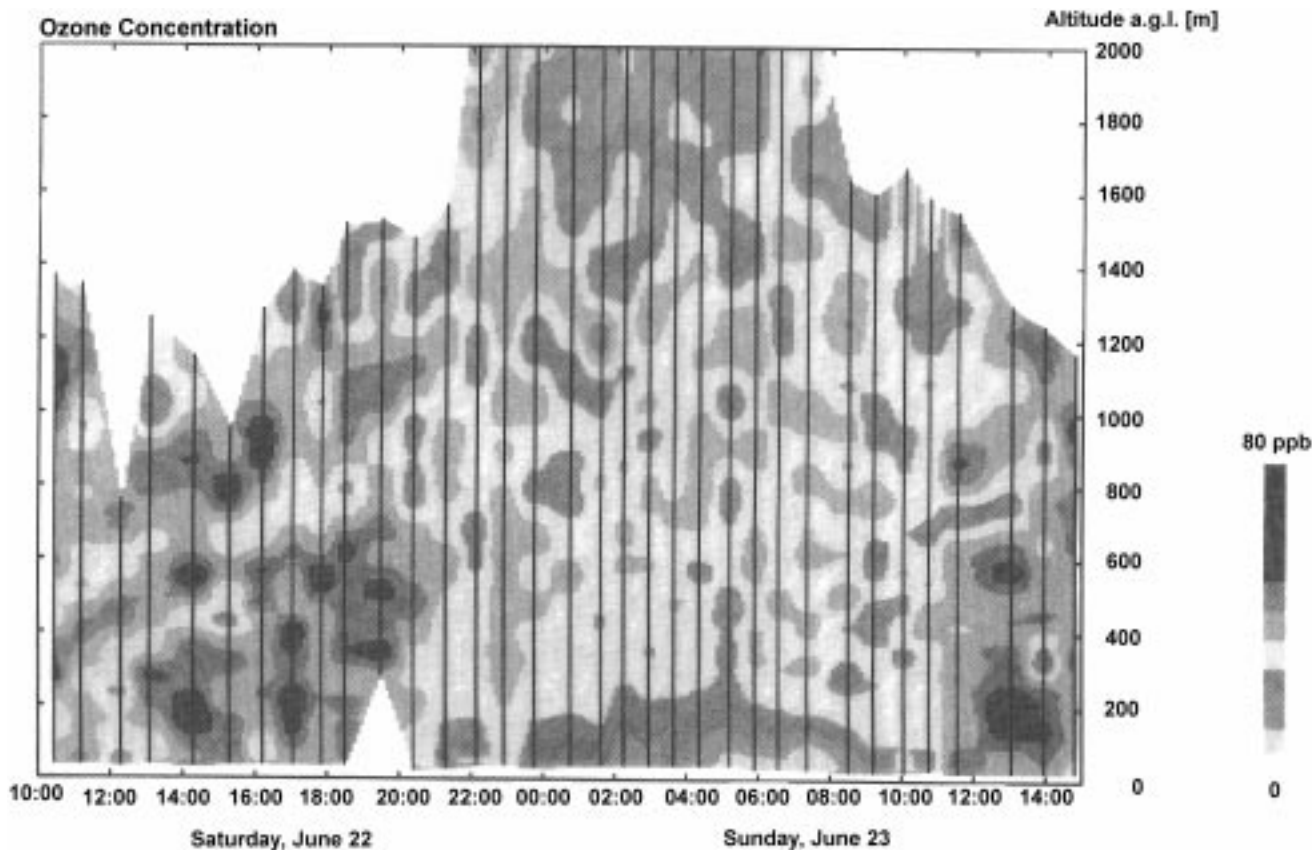


Figure 2. Lidar measurement – vertical scans La Rinconada/Spain Mainroad.



Photo 3. Instrument LIDAR 510 M – ELIGHT.

Les caractéristiques suivantes ont été étudiées :

- linéarité,
- limites de détection,
- reproductibilité,
- étude des interférences chimiques,
- portée du LIDAR.

Comme dans le cas des instruments DOAS, et pour être en conformité avec la norme française NF X 20-300, deux

cellules de longueur 453 mm (alimentées en gaz de « zéro » pour l'une et en gaz de concentration connue pour l'autre) ont été placées non pas sur le trajet optique du LIDAR – car elles auraient constitué un obstacle – mais à l'intérieur de l'appareil entre la source laser et le premier miroir du télescope. Le rayonnement laser, après avoir traversé l'une ou l'autre cuve, est émis à l'atmosphère puis récupéré et analysé après rétrodiffusion.

Les concentrations atmosphériques sont ainsi mesurées avec et sans cellule. La différence fournit la concentration de référence du gaz de la cellule.

Les résultats sont exprimés en « concentration × longueur » (ppb km ou ppm m).

La concentration de SO₂ dans la cellule a varié de 0,5 à 215 ppm (ce qui correspond à 0,22 à 98 ppb km).

Les principaux essais et les résultats correspondants obtenus sont les suivants :

- l'étude de la linéarité et du calibrage a été réalisée conformément à la norme NF X 20-300 en générant plusieurs niveaux de concentrations C_i . Pour chaque concentration C_i , on effectue j mesures x_{ij} . Parmi celles-ci figurent les deux concentrations faible et élevée servant à l'établissement de la droite de calibrage.

Les résultats, présentés sur la figure 3 sont très satisfaisants. Ils donnent la courbe de réponse du LIDAR avec $\pm 1\sigma$ ainsi que la droite de régression.

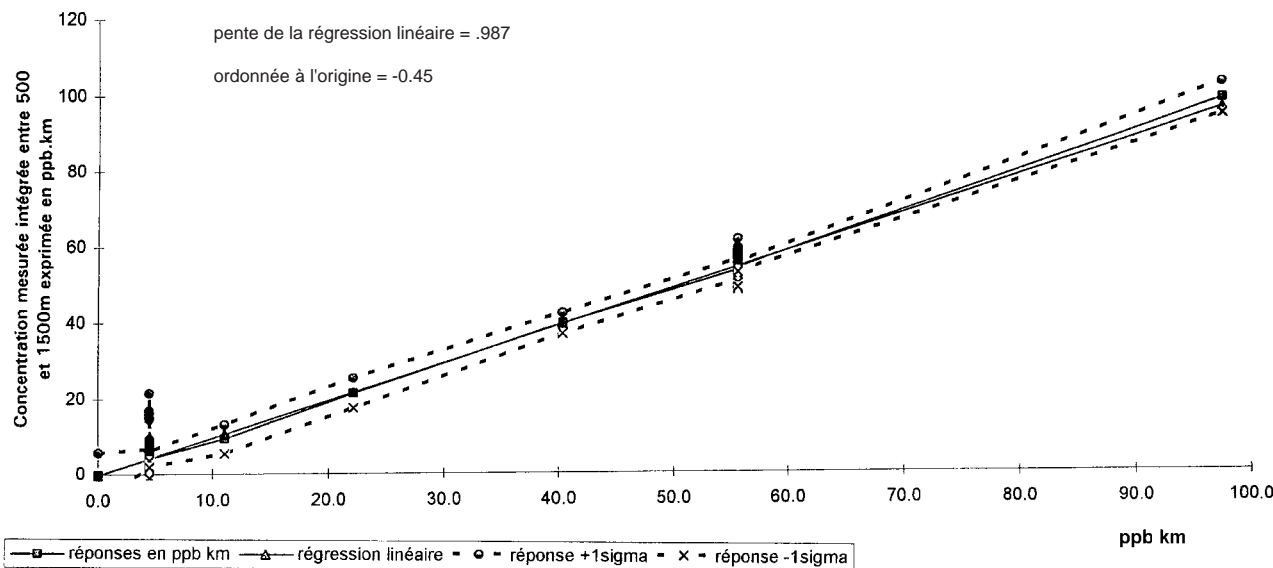


Figure 3 : Étude de la linéarité avec les cellules de 453 mm par le SO₂ sur l'ensemble des points d'essai.

• les limites de détection (fonction de l'écart-type σ) ont été déterminées de trois façons différentes :

- selon la norme française à une concentration faible répétée 8 fois (limite = $2 t\sigma$ avec t coefficient de Student),
- en se calant deux fois sur la même longueur d'onde λ_{off} ,
- avec les deux cellules remplies de gaz de zéro (1 essai).

Les résultats montrent que la limite de quantification (par beau temps) est inférieure à 5 ppb.km, voire 3 ppb.km pour les deux premières méthodes (la troisième n'ayant fait l'objet que d'un essai).

• les essais d'interférences ont consisté à introduire une concentration connue de SO₂ dans la cellule de référence (de l'ordre de 115 ppm soit 52 ppb.km) et à mesurer le NO₂, l'ozone, le toluène et le benzène en se calant sur les longueurs d'onde respectives de ces polluants. Les résultats obtenus étaient satisfaisants sauf pour le NO₂.

Les tests effectués sur le LIDAR 510 M se sont limités à un seul gaz : le SO₂. On a cependant pu vérifier que l'appareil était conforme aux caractéristiques annoncées pour les limites, la linéarité, la stabilité au cours du temps.

Des essais d'évaluation doivent se poursuivre portant notamment sur d'autres polluants. En outre, un programme de validation des mesures par LIDAR est envisagé tant en galerie souterraine que sur site urbain en collaboration avec un réseau de mesure de la qualité de l'air.

Références

1. Poulleau, J.; Denis, J. Évaluation de l'appareil de mesure de polluants atmosphériques OPSIS (SO₂, NO₂, O₃, C₆H₆, C₇H₈, CH₂O), Rapport d'étude INERIS Air-JPo- n° 3241/93 (1993).
2. Poulleau J.; Denis, J. Évaluation de l'appareil de mesure de polluants atmosphériques SANOVA CD (SO₂, NO₂, O₃, C₆H₆, C₇H₈, CH₂O), Rapport d'étude INERIS MAN-JPo-n° 252/95 (1995).
3. Ottobriani, B.; Noriega Guerra, A.; de Saeger, E.; Sandroni, S. Validation of a DOAS instrument for the measurement of atmospheric trace constituents, Report, EUR-16413-EN, ERLAP, JRC-Ispra (1996).
4. Ottobriani, B.; de Saeger, E. Évaluating the performance of the SANOVA/DOAS system for SO₂, NO₂ and O₃ measurements, Report, EUR-17300-EN, ERLAP, JRC-Ispra (1997).
5. Tetry, V. Essais de 2 types d'instruments DOAS : réception et essais en parallèle, Rapport d'étude INERIS (1997).
6. Ancellet, G. et al. *Atmospheric Env.* **1987**, 21(10), 2215-2226.
7. Ancellet, G.; Beekmann, M. *Atmospheric Env.* **1995**, 29(9), 1027-1042.
8. Ancellet, G. et al. (1996) The airborne LIDAR for tropospheric ozone (ALTO), Congrès Berlin 1996 (5); p 399.
9. Apituley, A. et al. (1996) RIVM Tropospheric ozone LIDAR routine measurements, validation and analysis, Congrès Berlin 1996 (5); p 375.
10. Baumgartner, R. A. et al. (1996) *JAPCA* **1979**, 29(11), 1162-1165.
11. Bisson, S. E. et al. (1996) An advanced UV Dial system for environmental monitoring, Congrès Dallas (7); p 137-143.
12. Carr, L. et al. (1994) Frequency agile CO₂ DIAL for environmental monitoring, Congrès Atlanta 1993 (2); p 282.
13. Frejafon, E. et al. (1997) Mesure 3 D de la pollution par LIDAR (1997); à paraître.
14. INERIS, Préévaluation du LIDAR 510M commercialisé par Elight GmbH, Rapport INERIS, décembre 1996.
15. Kölsch, H. et al. *Appl. Phys.* **1992**, B54, 89-94.
16. Milton, M. J. T. et al. *SPIE Symp. Ser.* **1995**, 2506, 680-688.
17. Ulbricht, M. et al. Calibration of LIDAR systems, Congrès Atlanta, 1993 (2); p 194.
18. VDI Draft Guideline 4210 (1997), Remote sensing gaseous air pollution measurement with LIDAR by differential absorption and scattering DOAS-LIDAR.
19. Weidauer, D. et al. (1996), Ozone, VOC, NO₂ and aerosol monitoring in urban and industrial areas using a mobile DIAL System, Congrès Berlin, 1996 (5); p 423.
20. Weitkamp, C. et al. (1996) Laser remote sensing of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, toluene, ozone and dust in the industrial area of Cubatao (Brésil), Congrès Berlin, 1996 (5); p 411.
21. Wolf, J. P. et al. (1994) 3D monitoring of air pollution using « all solid state » LIDAR systems, Congrès Atlanta, 1993 (2); p 147.